

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2002 年 10 月 10 日 (10.10.2002)

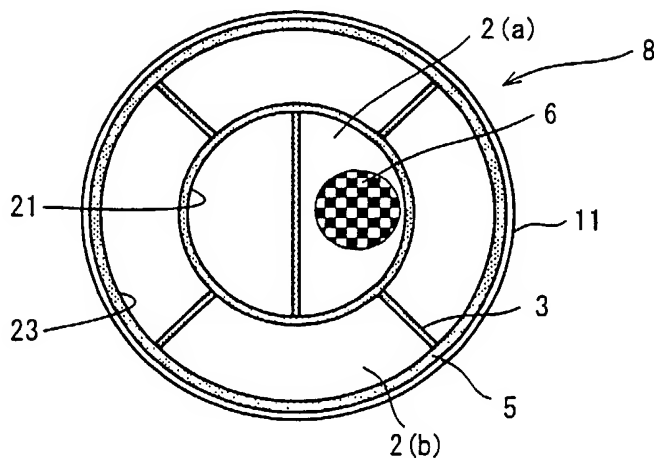
PCT

(10) 国際公開番号
WO 02/079618 A1

- (51) 国際特許分類: **F01N 3/28, B01D 53/92, B32B 3/12 // B01D 39/20, 46/00**
- (21) 国際出願番号: PCT/JP02/02107
- (22) 国際出願日: 2002 年 3 月 7 日 (07.03.2002)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2001-95416 2001 年 3 月 29 日 (29.03.2001) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本碍子株式会社 (NGK INSULATORS,LTD.) [JP/JP]; 〒467-8530 愛知県 名古屋市 瑞穂区 須田町2番56号 Aichi (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 土方 俊彦 (HIJIKATA, Toshihiko) [JP/JP]; 〒467-8530 愛知県 名古屋市 瑞穂区 須田町2番56号 日本碍子株式会社内 Aichi (JP).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: HONEYCOMB STRUCTURE AND ASSEMBLY THEREOF

(54) 発明の名称: ハニカム構造体及びそのアセンブリ



(57) Abstract: A honeycomb structure (1) wherein a plurality of honeycomb segments (2) consisting of honeycomb structures having a number of axially extending communication holes (6) separated by partition walls are integrated. A honeycomb structure (1) wherein a compression elastic material (A (3)) is disposed between the outer peripheral surface (21) of one or more honeycomb segments (2 (a)) not forming the outermost peripheral surface (23) of the honeycomb structure (1) and a honeycomb segment (2 (b)) adjoining thereto. A honeycomb structure assembly (8) prepared by compressing and holding the honeycomb structure (1) in a metallic container (11) by arranging a compression elastic material (B (5)) in a compressed state on the outermost peripheral surface (23) of the honeycomb structure (1). This honeycomb structure and assembly are superior in durability and reliability in that the thermal stress is reduced which is produced in the honeycomb structure by sharp changes in inflow gas temperature, local reaction heat and combustion heat during use and in that the honeycomb structure is prevented from being damage.

[続葉有]



WO 02/079618 A1



(57) 要約:

隔壁により仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔（６）を有するハニカム構造からなる複数のハニカムセグメント（２）が一体化されてなるハニカム構造体（１）である。ハニカム構造体（１）の最外周面（２３）を構成しない１又は２以上のハニカムセグメント（２（ａ））の外周面（２１）とこれに隣接するハニカムセグメント（２（ｂ））との間に圧縮弾性材料Ａ（３）を配してなるハニカム構造体（１）である。ハニカム構造体（１）を、ハニカム構造体（１）の最外周面（２３）に圧縮弾性材料Ｂ（５）を圧縮状態で配することにより金属容器（１１）内に圧縮把持してなるハニカム構造体アッセンブリ（８）である。この、ハニカム構造体及びアッセンブリは、使用時における流入ガス温の急激な変化、局所的な反応熱、燃焼熱によってハニカム構造体に生ずる熱応力を低減し、ハニカム構造体の破壊を防止することで耐久性、信頼性により優れる。

明 細 書

ハニカム構造体及びそのアッセンブリ

技術分野

本発明は、内燃機関、ボイラー、化学反応機器および燃料電池用改質器等の触媒作用を利用する触媒用担体または排ガス中の微粒子捕集フィルター等に用いられるハニカム構造体及びそのアッセンブリに関し、特に使用時の熱応力により破損することが少ないハニカム構造体及びそのアッセンブリに関する。

背景技術

内燃機関、ボイラー、化学反応機器および燃料電池用改質器等の触媒作用を利用する触媒用担体または排ガス中の微粒子、特にディーゼル微粒子の捕集フィルター等にハニカム構造体が用いられている。

この様な目的で使用されるハニカム構造体は、排気ガスの急激な温度変化や局所的な発熱によってハニカム構造内の温度分布が不均一となり、構造体にクラックを生ずる等の問題があった。特にディーゼルエンジンの排気中の粒子状物質を捕集するフィルターとして用いられる場合には、溜まったカーボン微粒子を燃焼させて除去し再生することが必要であり、この際に局所的な高温化が避けられないため、大きな熱応力が発生し易く、クラックが発生し易かった。

このため、ハニカム構造体を複数に分割したセグメントを接合材により接合する方法が提案された。たとえば、米国特許第4 3 3 5 7 8 3号公報には、多数のハニカム体を不連続な接合材で接合するハニカム構造体の製造方法が開示されている。また、特公昭6 1－5 1 2 4 0号公報には、セラミック材料よりなるハニカム構造のマトリックスセグメントを押出し成形し、焼成後その外周部を加工して平滑にした後、その接合部に焼成後の鉍物組成がマトリックスセグメントと実質的に同じで、かつ熱膨脹率の差が8 0 0℃において0. 1%以下となるセラミック接合材を塗布し、焼成する耐熱衝撃性回転蓄熱式が提案されている。また、1 9 8 6年のSAE論文8 6 0 0 0 8には、コージェライトのハニカムセグメン

トを同じくコーゼライトセメントで接合したセラミックハニカム構造体が開示されている。さらに特開平 8-28246 号公報には、ハニカムセラミック部材を少なくとも三次元的に交錯する無機繊維、無機バインダー、有機バインダー及び無機粒子からなる弾性質シール材で接着したセラミックハニカム構造体が開示されている。

しかしながら、排ガス規制の更なる強化やエンジンの高性能化等のため、エンジン燃焼条件の改善、触媒浄化性能の向上を狙いとして、排気ガス温度が年々上昇してきており、ハニカム担体に要求される耐熱衝撃性も厳しくなっている。従って、上述のようなハニカム構造体であっても、使用時における流入ガス温の急激な変化、局所的な反応熱、燃焼熱等がより大きくなると、十分に熱応力を緩和できず、ハニカム構造体にクラックを生じ、極端な場合ハニカム構造体がばらけ、振動により構造体が粉々に破壊するなどの可能性が考えられる。

本発明はこのような事情に鑑みてなされたものであり、その目的とするところは、使用時における流入ガス温の急激な変化、局所的な反応熱、燃焼熱によってハニカム構造体に生ずる熱応力を低減し、ハニカム構造体の破壊を防止することで耐久性、信頼性により優れたハニカム構造体を提供することにある。

発明の開示

第 1 の発明は、隔壁により仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔を有するハニカム構造体からなる複数のハニカムセグメントが一体化されてなるハニカム構造体であって、前記ハニカム構造体の最外周面を構成しない 1 又は 2 以上の前記ハニカムセグメントの外周面とこれに隣接するハニカムセグメントとの間に圧縮弾性材料 A を配してなることを特徴とするハニカム構造体を提供するものである。

第 1 の発明において、ハニカム構造体の最外周面を構成するハニカムセグメントが互いに隣接する面の間の一部又は全部に圧縮弾性材料を配して成るハニカム構造体がさらに好ましい。又、圧縮弾性材料 A がセラミック繊維製マットであることが好ましく、前記セラミック繊維製マットがアルミナまたはムライト組成を主成分とする非膨脹性マットであることがさらに好ましい。又、第 1 の発明のハニカム構造体が自動車排ガス浄化用として用いられることが好ましく、ディーゼ

ル微粒子捕集用フィルターとして用いられることがさらに好ましい。さらに、第1の発明において、ハニカムセグメントの主成分が、炭化珪素、窒化珪素、コーゼライト、アルミナ、ムライト、ジルコニア、燐酸ジルコニウム、アルミニウムチタネート、チタニア及びこれらの組み合わせよりなる群から選ばれる少なくとも1種のセラミックス、Fe-Cr-Al系金属、ニッケル系金属又は金属SiとSiCとからなるものであることが好ましい。

第2の発明は、上記ハニカム構造体を、該ハニカム構造体の最外周面に圧縮弾性材料Bを圧縮状態で配することにより金属容器内に圧縮把持してなるハニカム構造体アセンブリを提供するものである。

第2の発明において、前記圧縮弾性材料Bがセラミック繊維製マットであることが好ましく、バーミュキュライトを含む加熱膨脹性マットであることがさらに好ましく、アルミナまたはムライト組成を主成分とする非膨脹性マットであることがより好ましい。又、ハニカム構造体アセンブリが、押込み、巻き締め、クラムシェル、スウェーピングでキャニングされていることが好ましい。更に、ハニカムセグメントに触媒を担持させた後、金属容器に収納してなるハニカム構造体アセンブリが好ましく、また、ハニカムセグメントを金属容器に収納した後に、該ハニカムセグメントに触媒を担持させてなるハニカム構造体アセンブリも好ましい。

図面の簡単な説明

図1(a)は本発明の一実施形態を示すハニカム構造体の平面－模式図であり、図1(b)及び図1(c)はハニカムセグメントの平面－模式図である。

図2は、本発明の一実施形態を示すハニカム構造体アセンブリの平面－模式図である。

図3は、金属容器内へのハニカム構造体の押し込み方法の一例を示す一部切り欠き説明図である。

図4は、金属容器内へハニカム構造体を収納するための巻き絞め方法の一例を示す斜視図である。

図5は、金属容器内へハニカム構造体を収納するためのクラムシェル方法の一

例を示す斜視図である。

図 6 は、金属容器内へハニカム構造体を収納するためのスウェーピング方法の一例を示す流通孔方向に対する平行断面図である。

図 7 は、金属容器内へハニカム構造体を収納するためのスウェーピング方法の一例を示す流通孔方向に対する平行断面図である。

図 8 は、実施例 1 において作られたハニカム構造体の平面－模式図である。

図 9 (a) は実施例 2 において作られたハニカム構造体、図 9 (b) はハニカムセグメント接合体の平面－模式図である。

図 10 (a) は実施例 3 において作られたハニカム構造体、図 10 (b) はハニカムセグメント接合体の平面－模式図である。

図 11 (a) は実施例 4 において作られたハニカム構造体、図 11 (b) 及び図 11 (c) はハニカムセグメント接合体の平面－模式図である。

図 12 (a) は実施例 5 において作られたハニカム構造体、図 12 (b) はハニカムセグメント接合体の平面－模式図である。

図 13 (a) (b) は、比較例において作られたハニカム構造体の平面－模式図であり、各々図 13 (a) は比較例 1、図 13 (b) は比較例 2 のハニカム構造体を示す。

図 14 は、破壊限界評価試験の結果を示すグラフである。

発明を実施するための最良の形態

以下、図面に従って、本発明のハニカム構造体及びハニカム構造体アセンブリの内容を詳細に説明するが、本発明は以下の実施形態に限定されるものではない。尚、以下において断面とは、特に断りのない限り流通孔方向に対する垂直の断面を意味する。

図 1 (a) は本発明に係るハニカム構造体の一実施形態を示すハニカム構造体の平面－模式図である。図 1 (a) に示す本発明のハニカム構造体 1 は隔壁により仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔 6 を有するハニカムセグメント 2 (b) 4 個及び 2 (a) 2 個が一体化されることにより構成されるが、各ハニカムセグメント 2 (a)、2 (b) が互いに隣接する面間に圧縮弾性材料 A としてセ

ラミック繊維製マット3を配して構成されたものである。

本発明の重要な特徴は、ハニカム構造体1の最外周面23を構成しないハニカムセグメント2(a)の外周面21とこれに隣接するハニカムセグメント2(b)のとの間に圧縮弾性材料Aを配するように構成したことである。この様な構成にしたことにより、本発明のハニカム構造体は使用時における流入ガス温の急激な変化、局所的な反応熱、燃焼熱等によって生ずるハニカムセグメント2(a)及び2(b)の変位を吸収するため、ハニカム構造体1に生ずる熱応力が減少し、ハニカム構造体1の破壊を防止できるだけでなく、ハニカム構造体をより高い温度環境で使用できるので、耐久性、信頼性とともにより高性能化をも可能とした。

本発明において、「ハニカム構造体の最外周面を構成しない1又は2以上のハニカムセグメント」とは、例えば図1(a)において、ハニカム構造体1の最外周面23を構成しないハニカムセグメント2(a)の1つ又は2つを意味する。最外周面23を構成しないハニカムセグメントを、1つのハニカムセグメント2(a)のみとした場合にはその外周面は図1(b)に示される半円柱形の側面21となり、2つのハニカムセグメント2(a)とした場合にはその外周面は図1(c)に示される円柱形の側面21となる。従って、図1(b)に示される場合には、半円柱形の側面21の周りにセラミック繊維製マット3を配すれば、他の面間にはセラミック繊維製マット3を配しても良く、セラミック繊維製マット3を配さずに接合材を用いて接合しても良い。図1(c)の場合には円柱形の側面21の周りにセラミック繊維製マット3を配すれば、他の面間にはセラミック繊維製マット3を配しても良く、セラミック繊維製マット3を配さずに接合材を用いて接合しても良い。好ましくは、図1に示すように、ハニカム構造体1の最外周面を構成するハニカムセグメント2(b)が互いに隣接する面25の間にもセラミック繊維製マット3を配するように構成される。

本発明において、圧縮弾性材料Aは耐熱性とクッション性を備えることが好ましい。耐熱性及びクッション性を有する圧縮弾性材料Aとしては、バーミュキュライトを実質上含まない非膨張性材料、又は少量のバーミュキュライトを含む低膨張性材料であり、アルミナ、高アルミナ、ムライト、炭化珪素、窒化珪素、ジルコニア、チタニアからなる群より選ばれた少なくとも1種あるいはそれらの複

合物からなるセラミック繊維を主成分とすることが好ましく、この中でもバーミキュライトを実質上含まずアルミナ又はムライトを主成分とする非膨張性材料がより好ましい。さらに、これらの繊維製マットであることが好ましく、セラミック繊維製マットがアルミナ又はムライト組成を主成分とする非膨張性マットであることがさらに好ましい。これらのセラミック製マットは、被処理流体の漏れを防止する観点からシール性を有することがさらに好ましい。圧縮弾性材料Aの好適な具体例は、3M社製／1100HTや三菱化学社製／マフテック等である。

本発明において、ハニカムセグメント2は強度、耐熱性等の観点から、主成分が、炭化珪素、窒化珪素、コーージェライト、アルミナ、ムライト、ジルコニア、燐酸ジルコニウム、アルミニウムチタネート、チタニア及びこれらの組み合わせよりなる群から選ばれる少なくとも1種のセラミックス、Fe-Cr-Al系金属、ニッケル系金属又は金属SiとSiCとからなることが好ましい。本発明において、主成分とは成分の80質量%以上を占め、主結晶相となるものを意味する。

ハニカムセグメント2のセル密度（単位断面積当りの流通孔の数）は0.9～310セル/cm²（6～2000セル/平方インチ）が好ましい。セル密度が0.9セル/cm²未満になると、幾何学的表面積が不足し、310セル/cm²を超えると、圧力損失が大きくなりすぎる。また、ハニカムセグメント2の流通孔の断面形状（セル形状）は、製作上の観点から、三角形、四角形および六角形のうちのいずれかであることが好ましい。

圧縮弾性材料Aを配する際の製作上の観点から、ハニカムセグメント2の断面は、少なくとも一辺が30mm以上であることが好ましく、さらに好ましくは50mm以上、最も好ましくは70mm以上である。

図2は図1（a）（b）（c）に示すハニカム構造体を金属容器11に保持したハニカム構造体アッセンブリ8の平面一模式図である。図2に示す本発明のハニカム構造体アッセンブリ8は、ハニカム構造体1の最外周面に圧縮弾性材料Bを圧縮状態で配することによりハニカム構造体1を金属容器11に圧縮把持してなるものである。

本発明において圧縮弾性材料Bとしては、前述の圧縮弾性材料Aと同様に耐熱

性及びクッション性を有することが好ましく、さらにシール性を有することが好ましいが、非膨張性材料であっても膨張性材料であっても良い。好ましい圧縮弾性材料Bはアルミナ、高アルミナ、ムライト、炭化珪素、窒化珪素、ジルコニア、チタニアからなる群より選ばれた少なくとも1種あるいはそれらの複合物を主成分とするセラミック繊維等であるが、これらの繊維製マットであることがさらに好ましい。具体的には前述の3M社製／1100HTや三菱化学社製／マフテック等を用いることが出来るが、膨張性マットである3M社製／インタラムマット等を用いることもできる。

本発明において、ハニカム構造体1を圧縮弾性材料Bとともに圧縮状態で金属容器11内に入れる方法は、図3に示すガイド17を用いた押し込み方法、図4に示す金属板11cを巻き付けて引っ張ることで面圧を付与し、金属板11cの合わせ部を溶接して固定する巻き絞め方法、あるいは図5に示す2分割された金属容器11a、11bで負荷を与えながら挟み込み、2つの金属容器11a、11bの合わせ面（つば）16a、16bの個所を溶接することで一体化容器とするクラムシェル方法が好適である。また、この他に、図6に示すような、金属塑性加工技術を応用した、金属容器11を外部からタップ（加圧型）12を介して圧縮圧力を加えて金属容器11の外径寸法を絞る方法（スウェーjing方法）も好適である。更には、図7に示すように、塑性加工を応用した方法で金属容器11を回転させながら加工治具18を用いて最外周面を塑性加工により絞り込む方法、いわゆる回転鍛造方法によることで金属容器の外径を絞り、面圧を付与する方法も可能である。

本発明のハニカム構造体又はハニカム構造体アッセンブリを触媒担体として、内燃機関、ボイラー、化学反応機器、燃料電池用改質器等に用いる場合、ハニカムセグメントに触媒能を有する金属を担持させるようにする。触媒能を有する代表的なものとしてはPt、Pd、Rh等が挙げられ、これらのうちの少なくとも1種をハニカムセグメントに担持させることが好ましい。

一方、本発明のハニカム構造体又はハニカム構造体アッセンブリを、ディーゼルエンジン用パティキュレートフィルター（DPF）のような、排気ガス中に含まれる粒子状物質を捕集除去するためのフィルターに用いようとする場合、ハニ

カム構造体の流通孔を交互に封じ隔壁をフィルターとする構造を有するものが好ましい。

このような、ハニカムセグメントから構成されるハニカム構造体の一端面より粒子状物質を含んだ排気ガスを通すと、排気ガスは当該一端面側の流通孔が封じられていない流通孔よりハニカム構造体の内部に流入し、濾過能を有する多孔質の隔壁を通過し、他端面側の封じられていない孔より排出される。この隔壁を通過する際に粒子状物質が隔壁に捕捉される。

なお、捕捉された粒子状物質が隔壁上に堆積してくると、圧損が急激に上昇し、エンジンに負荷がかかり、燃費、ドライバビリティが低下するので、定期的にヒーター等の加熱手段により、粒子状物質を燃焼除去し、フィルター機能を再生させるようにする。この燃焼再生時、燃焼を促進させるため、ハニカム構造体に前記のような触媒能を有する金属を担持させてもよい。

本発明において、ハニカム構造体アッセンブリ 8 に触媒を担持させる方法としては、触媒担持前に金属容器 11 内にハニカム構造体 1 を把持し、ハニカム構造体アッセンブリ 8 としてから、ハニカム構造体 1 に触媒を担持させる方法が可能である。この方法によれば、触媒担持工程中に、ハニカム構造体 1 が欠けたり、破損したりする可能性を回避することが出来る。また、ハニカムセグメント 2 に触媒成分を担持した後に、ハニカム構造体 1 とし、これを金属容器 11 内に収納把持してなることが、本発明のハニカム構造体又はハニカム構造体アッセンブリを触媒コンバータとして用いる場合に好ましい。

以下、本発明を実施例に基づいて更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

尚、以下の実施例、従来例のハニカム構造体は総て、材質が炭化珪素、隔壁厚さが 0.38 mm、セル密度（単位断面積当りの流通孔の数）が 31 セル/cm² でこれを交互に目封じし、隔壁をフィルターとして利用するディーゼル微粒子捕集用フィルターである。

（実施例 1）

原料として、炭化珪素粉末を使用し、これにメチルセルロース及びヒドロキシ

プロポキシルメチルセルロース、界面活性剤及び水を添加して、可塑性の坯土を作製した。この坯土を押出成形し、マイクロ波及び熱風で乾燥した。次いで、端面を交互に千鳥状になるようにハニカム構造体と同材質の目封止材で目封止し、次に、N₂ 雰囲気中で加熱脱脂した後、Ar 雰囲気中で焼成して、図 8 に示される、外径 14.4 mm、内径 7.3 mm、長さ 15.2 mm のハニカムセグメント 2 (b) 4 個と直径 7.2 mm、長さ 15.2 mm の半円柱状ハニカムセグメント 2 (a) 2 個を得た。これらを一体化させる際に、ハニカムセグメント 2 (a) の外周面 2.1 及びハニカムセグメント 2 (b) 同士が隣接する面 2.5 にセラミック繊維製非膨脹マット 3 を配し、両面テープにより 6 個のハニカムセグメント 2 (a)、2 (b) を一体化してハニカム構造体 1 とした。さらに、そのハニカム構造体 1 の最外周面 2.3 に前述のものと同一セラミック繊維製非膨脹マットを巻き付け、SUS 409 の金属容器にテーパ治具（ガイド）により押込んでセグメント間、及びハニカム構造体と金属容器間を圧縮固定し、直径 14.4 mm×長さ 15.2 mm の円柱形ハニカム構造体アセンブリを得た。

（実施例 2）

実施例 1 と同様にして得られた、図 9 (b) に示される、寸法形状が 30 mm×30 mm×15.2 mm の四角柱状ハニカムセグメント 2 (c) 2 個とハニカムセグメント 2 (d) 1 個と、ハニカムセグメント 2 (e) 2 個の合計 5 個を、コロイダルシリカとアルミナファイバーを水で混合した接合材 7 により接合、乾燥してハニカムセグメント接合体 9 (a) を 4 個作成した。同様に寸法形状が 30 mm×30 mm×15.2 mm の四角柱状ハニカムセグメント 2 (c) 4 個をコロイダルシリカとアルミナファイバーを水で混合した接合材 7 により接合、乾燥してハニカムセグメント接合体 9 (b)（ハニカム構造体の最外周部を構成しないハニカムセグメント）を 1 個作成した。次いで、4 個のハニカム接合体 9 (a) と 1 個のハニカム接合体 9 (b) を一体化する際に、ハニカムセグメント接合体 9 (b) の外周面 2.1 及びハニカムセグメント接合体 9 (a) 同士が隣接する面 2.5 にセラミック繊維製非膨脹マット 3 を配し、両面テープにより総ての接合体を一体化して図 9 (a) に示されるハニカム構造体 1 とした。さらに、そのハニカム構造体 1 の最外周面 2.3 に前述のものと同一セラミック繊維製非膨脹マットを

巻き付け、SUS409の金属容器にテーパー治具により押込んでセグメント間、及びハニカム構造体と金属容器間を圧縮固定し、直径144mm×長さ152mmの円柱形ハニカム構造体アセンブリを得た。

(実施例3)

実施例2と同様にハニカムセグメント接合体9(a)を4個作成し、図10(b)に示される、寸法形状が30mm×30mm×152mmの四角柱状ハニカムセグメント2(c)2個をコロイダルシリカとアルミナファイバーを水で混合した接合材7により接合、乾燥して、30mm×60mm×152mmの四角柱状ハニカムセグメント接合体9(c)を2個作成した。これら6個のハニカムセグメント接合体9(a)及び9(c)を一体化させる際に、接合体9(c)の外周面21及び接合体9(a)同士が隣接する面25にセラミック繊維製非膨脹マット3を配し、両面テープにより6個のハニカムセグメント9(a)及び9(c)を一体化し図10(a)に示されるハニカム構造体1とした。さらに、そのハニカム構造体1の最外周面23に前述と同じセラミック繊維製非膨脹マットを巻き付け、SUS409の金属容器にテーパー治具により押込んでセグメント間、ハニカム構造体と金属容器間を圧縮固定し、直径144mm×長さ152mmの円柱形ハニカム構造体アセンブリを得た。

(実施例4)

実施例3と同様にハニカムセグメント接合体9(c)を2個作成し、図11(b)に示される、ハニカムセグメント2(c)1個とハニカムセグメント2(d)1個とハニカムセグメント2(e)1個の合計3個を接合材7により接合、乾燥して、ハニカムセグメント接合体9(d)を4個、ハニカムセグメント2(c)2個とハニカムセグメント2(e)2個を接合材7により接合、乾燥して、ハニカムセグメント接合体9(e)を2個作成した。次いで、2個の接合体9(c)と4個の接合体9(d)と2個の接合体9(e)を一体化する際に、接合体9(c)の外周面21、9(d)同士が隣接する面25、及び9(d)と9(e)が隣接する面25にセラミック繊維製非膨脹マット3を配し、両面テープにより総ての接合体を一体化して図11(a)に示されるハニカム構造体1とした。さらに、そのハニカム構造体の最外周面23に前述のものと同一セラミック繊維製非膨脹

マットを巻き付け、SUS409の金属容器にテーパー治具により押込んでセグメント間、及びハニカム構造体と金属容器間を圧縮固定し、直径144mm×長さ152mmのハニカム構造体アセンブリを得た。

(実施例5)

実施例4と同様にハニカムセグメント接合体9(c)及び9(e)を各々2個作成し、図12(b)に示される、ハニカムセグメント2(c)2個とハニカムセグメント2(d)2個と、ハニカムセグメント2(e)2個の合計6個を、接合材7により接合、乾燥して、ハニカムセグメント接合体9(f)を2個作成した。次いで、2個の接合体9(c)と2個の接合体9(e)と2個の接合体9(f)を一体化する際に、接合体9(c)の外周面21及び9(e)と9(f)が隣接する面25にセラミック繊維製非膨脹マット3を配し、両面テープにより総ての接合体を一体化して図12(a)に示されるハニカム構造体とした。さらに、そのハニカム構造体の最外周面23に前述のものと同一セラミック繊維製非膨脹マットを巻き付け、SUS409の金属容器にテーパー治具により押込んでセグメント間、及びハニカム構造体と金属容器間を圧縮固定し、直径144mm×長さ152mmのハニカム構造体アセンブリを得た。

さらに、これら実施例の効果を確認、比較するため以下2つの従来例サンプルを比較例として同時に比較評価した。

(比較例1)

寸法形状が直径144mmの1/4形状で長さ152mmの断面扇形柱状ハニカムセグメント2(x)4個を前述のコロイダルシリカとアルミナファイバーを水で混合した接合材7により接合、乾燥、一体化し、図13(a)に示される直径144mm×152mmのハニカム構造体1を得た。さらに、その最外周面23にセラミック繊維製非膨脹マットを巻き付け、SUS409の金属容器にテーパー治具により押込んで容器とハニカム構造体を圧縮固定してハニカム構造体アセンブリを得た。

(比較例2)

寸法形状が30mm×30mm×152mmの四角柱状ハニカムセグメント2(c)12個とハニカムセグメント2(d)4個と、ハニカムセグメント2(e)

8個の合計24個を前述の接合材7により接合、乾燥、一体化し、図13(b)に示される直径144mm×長さ152mmの円柱形ハニカム構造体を得た。さらに、その最外周面23にセラミック繊維製非膨脹マットを巻き付け、SUS409の金属容器にテーパ治具により押込んで容器とハニカム構造体を圧縮固定してハニカム構造体アッセンブリを得た。

このようにして得た実施例1～5及び比較例1～2のハニカム構造体アッセンブリに、ディーゼルエンジンから排出される微粒子(以降スートと称する)を各々15g捕集し、入口ガス温700℃、酸素濃度10%、排ガス流量0.7Nm³/min.の排気ガスによりフィルターに堆積したスートを燃焼、ハニカム構造体の破損を確認、破損していなければ、さらにスートを20g、25gと5gステップで増加して行き、ハニカム構造体が破損するまで試験を繰返し実施した。

試験結果は図14に示すように比較例1、比較例2、の破壊限界スート量が25gと20gでその時のフィルター内最高温度は各々950℃、840℃であった。これに対し、実施例1～5の破壊限界スート量は35g～45gでその時のフィルター内最高温度は1060℃～1260℃と比較例に比べ、本発明のハニカム構造体及びそのアッセンブリは多量のスートと高い温度まで安全に使用することが可能であることを示した。

産業上の利用可能性

以上のように、本発明のハニカム構造体及びハニカム構造体アッセンブリは、ハニカム構造体の最外周面を構成しない1又は2以上のハニカムセグメントの外周面とこれに隣接するハニカムセグメントとの間に圧縮弾性材料Aを配したことにより、より多いスート量、より高い温度においてハニカム構造体の破壊を防止することが出来、優れた耐久性、信頼性を示した。

請 求 の 範 囲

1. 隔壁により仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔を有するハニカム構造からなる複数のハニカムセグメントが一体化されてなるハニカム構造体であって、前記ハニカム構造体の最外周面を構成しない1又は2以上の前記ハニカムセグメントの外周面とこれに隣接するハニカムセグメントとの間に圧縮弾性材料Aを配してなることを特徴とするハニカム構造体。
2. 前記ハニカム構造体の最外周面を構成するハニカムセグメントが互いに隣接する面の間の一部又は全部に圧縮弾性材料を配してなることを特徴とする請求項1に記載のハニカム構造体。
3. 圧縮弾性材料Aがセラミック繊維製マットであることを特徴とする請求項1又は2に記載のハニカム構造体。
4. 前記セラミック繊維製マットがアルミナまたはムライト組成を主成分とする非膨脹性マットであることを特徴とする請求項3に記載のハニカム構造体。
5. ハニカム構造体が自動車排ガス浄化用として用いられることを特徴とする請求項1乃至4の何れか1項に記載のハニカム構造体。
6. ハニカム構造体がディーゼル微粒子捕集用フィルターとして用いられることを特徴とする請求項1乃至5の何れか1項に記載のハニカム構造体。
7. ハニカムセグメントの主成分が、炭化珪素、窒化珪素、コーージェライト、アルミナ、ムライト、ジルコニア、磷酸ジルコニウム、アルミニウムチタネート、チタニア及びこれらの組み合わせよりなる群から選ばれる少なくとも1種のセラミックス、Fe-Cr-Al系金属、ニッケル系金属又は金属SiとSiCとからなることを特徴とする請求項1乃至6の何れか1項に記載のハニカム構造体。
8. 隔壁により仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔を有するハニカム構造からなる複数のハニカムセグメントが一体化されてなるハニカム構造体であって、前記ハニカム構造体の最外周面を構成しない1又は2以上の前記ハニカムセグメントの外周面とこれに隣接するハニカムセグメントとの間に圧縮弾性材料Aを配してなる請求項1乃至7の何れか1項に記載のハニカム構造体を、前記ハニカム構造体の最外周面に圧縮弾性材料Bを圧縮状態で配することにより金属容器

内に圧縮把持してなるハニカム構造体アッセンブリ。

9. 前記圧縮弾性材料Bがセラミック繊維製マットであることを特徴とする請求項8に記載のハニカム構造体アッセンブリ。

10. 前記セラミック繊維製マットがアルミナまたはムライト組成を主成分とする非膨脹性マットであることを特徴とする請求項9に記載のハニカム構造体アッセンブリ。

11. 前記セラミック繊維製マットがバーミュキュライトを含む加熱膨脹性マットであることを特徴とする請求項9に記載のハニカム構造体アッセンブリ。

12. ハニカム構造体アッセンブリが、押込み、巻き締め、クラムシェル、スウェーピングでキャニングされていることを特徴とする請求項8乃至11の何れか1項に記載のハニカム構造体アッセンブリ。

13. ハニカムセグメントに触媒を担持させた後、金属容器に収納してなる請求項8乃至12の何れか1項に記載のハニカム構造体アッセンブリ。

14. ハニカムセグメントを金属容器に収納した後に、該ハニカムセグメントに触媒を担持させてなる請求項8乃至12の何れか1項に記載のハニカム構造体アッセンブリ。

1/9

図1(a)

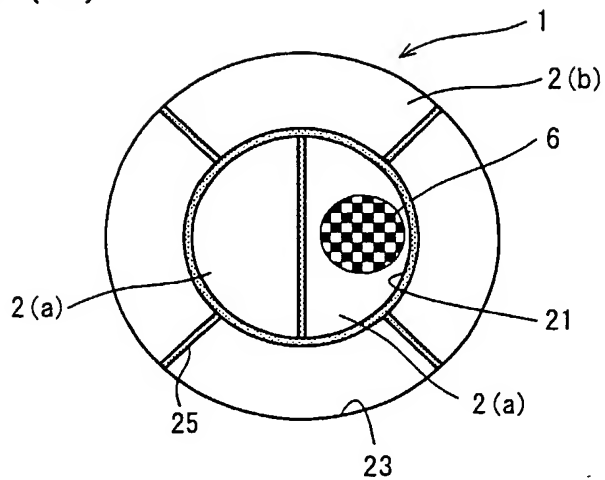


図1(b)

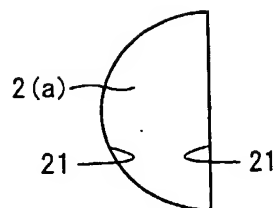


図1(c)

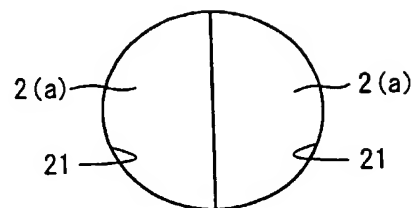
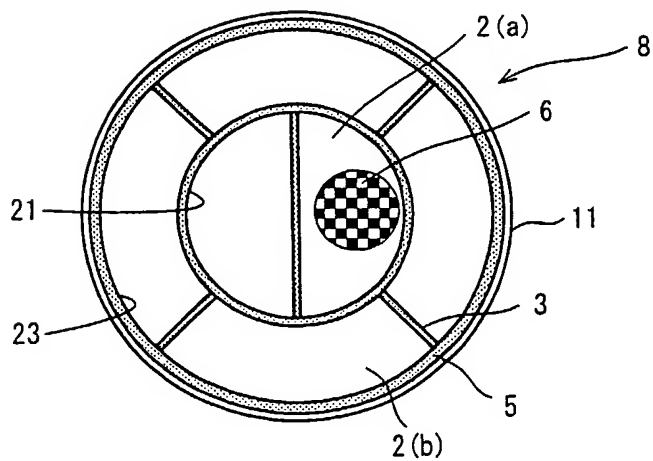


図2



2/9

図3

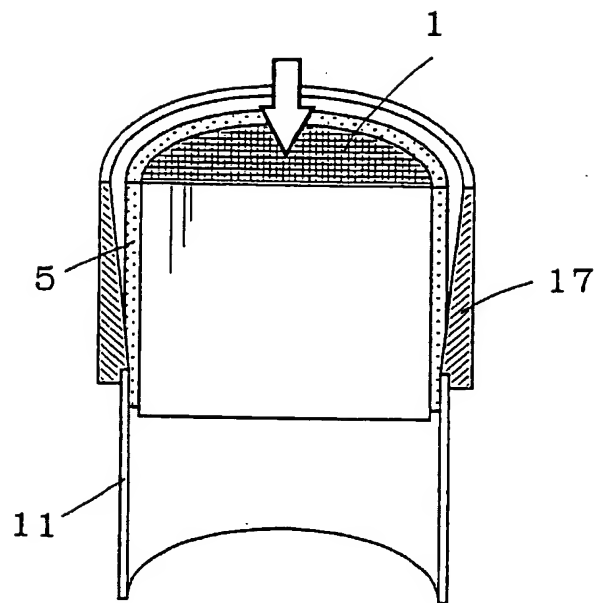
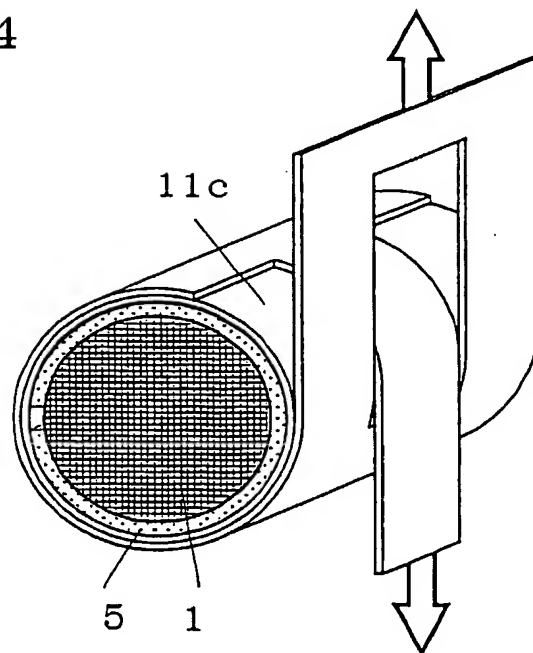


図4



3/9

図5

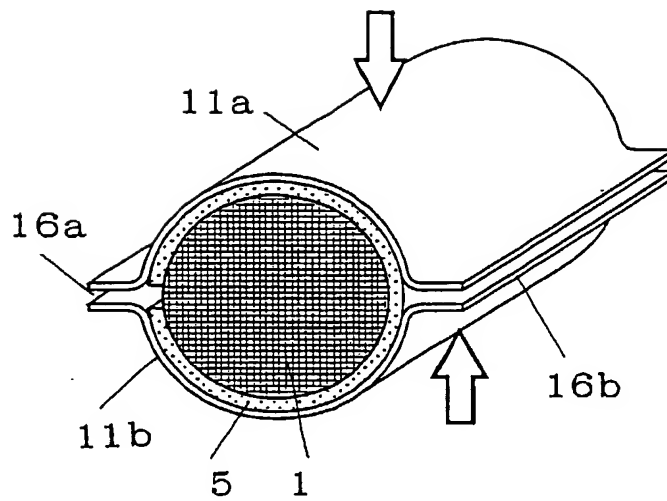
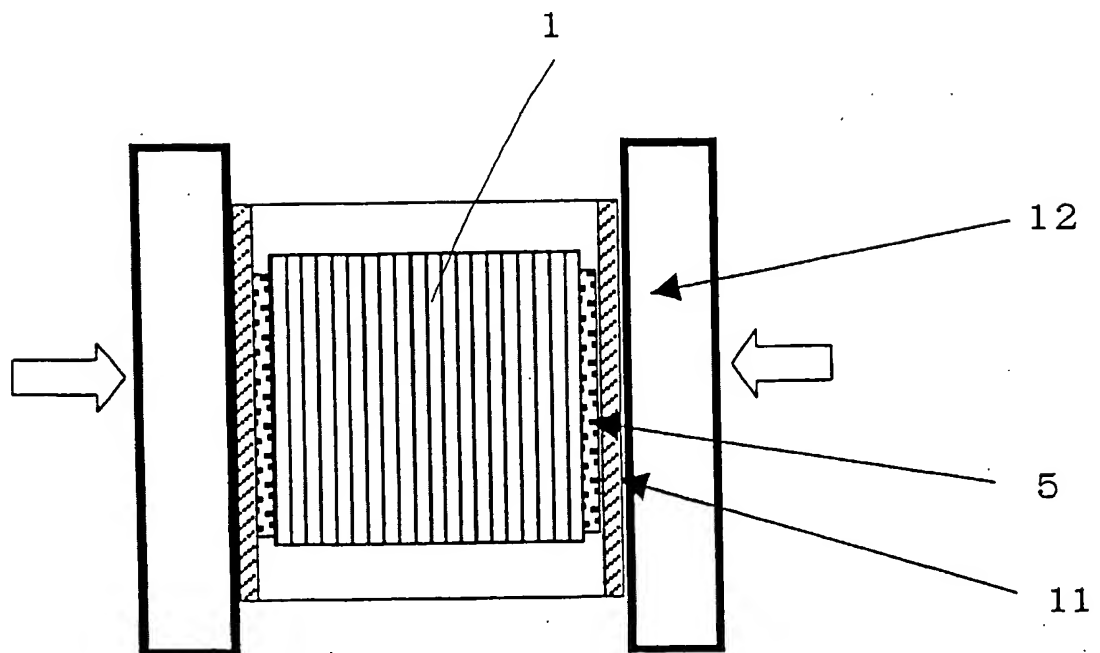


図6



4/9

図7

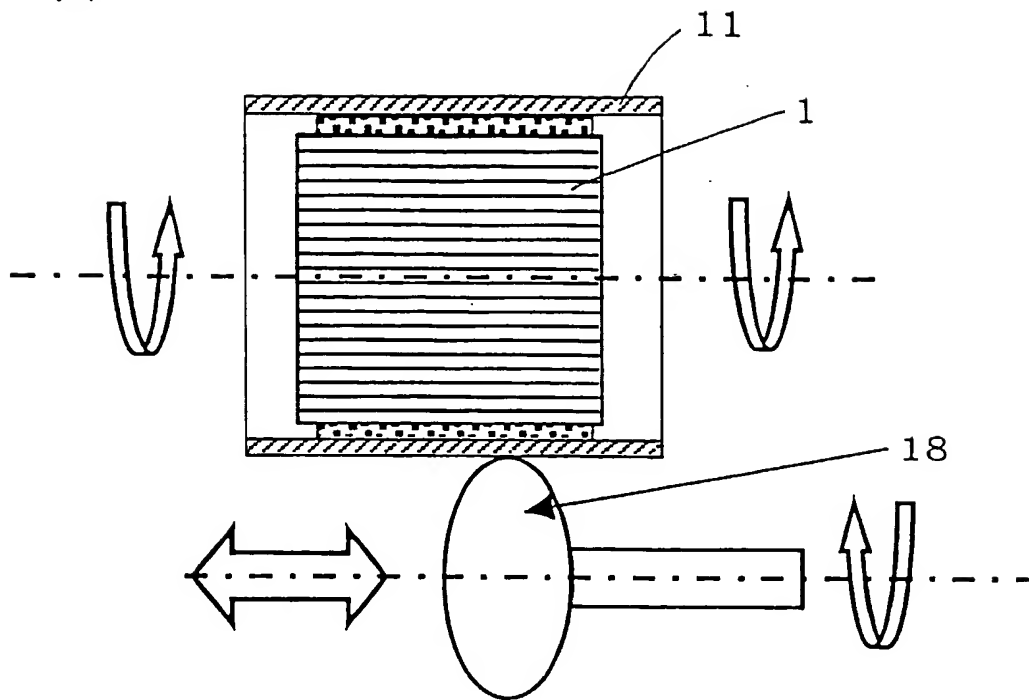
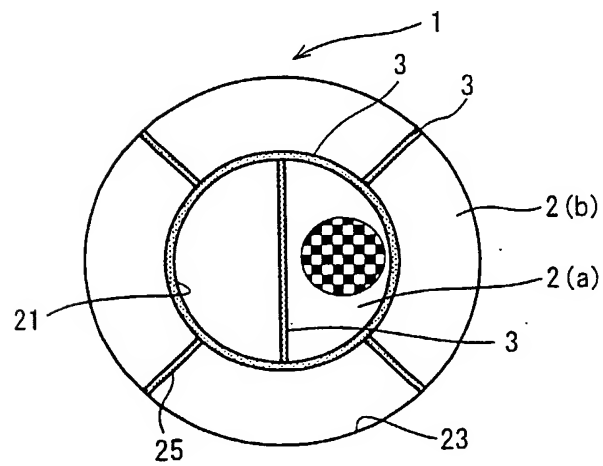


図8



5/9

図9(a)

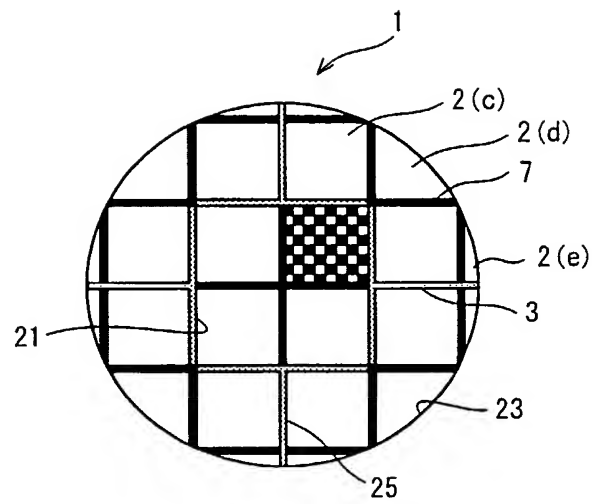
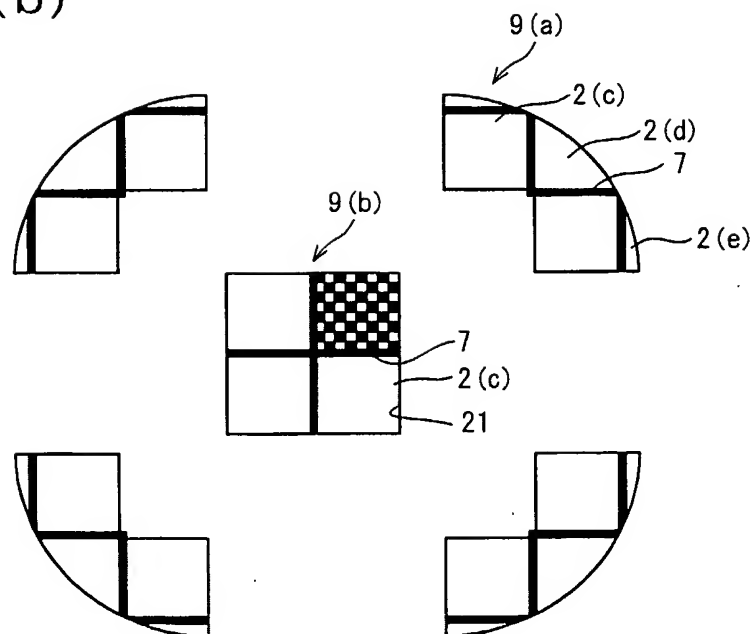


図9(b)



6/9

図10(a)

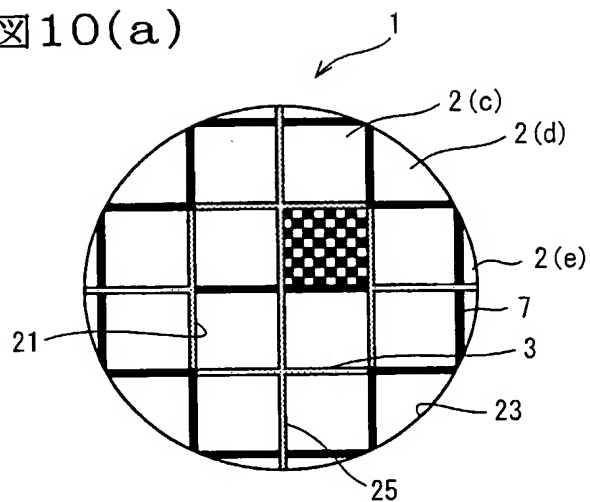


図10(b)

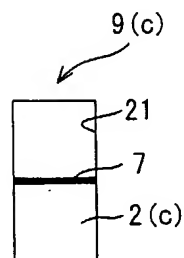


図11(a)

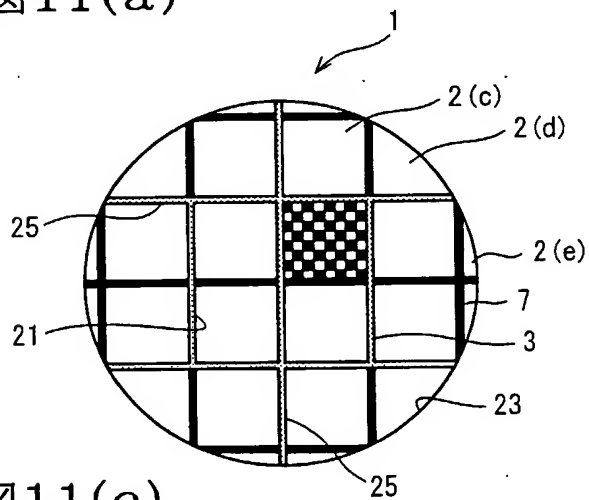


図11(b)

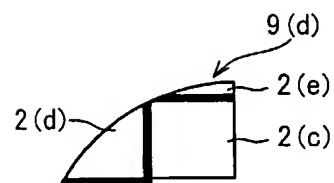
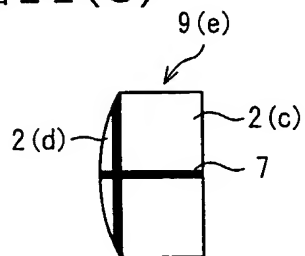


図11(c)



7/9

図12(a)

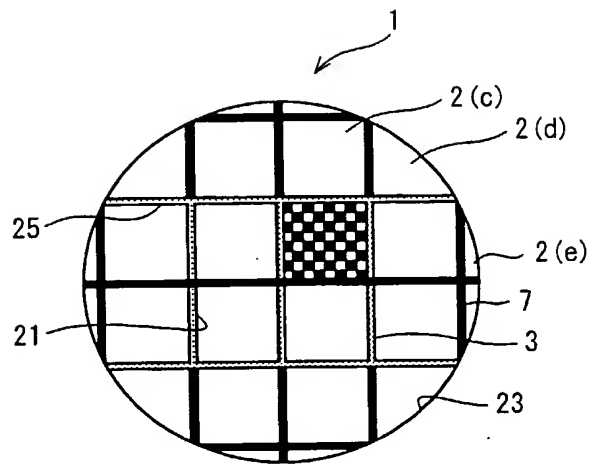


図12(b)

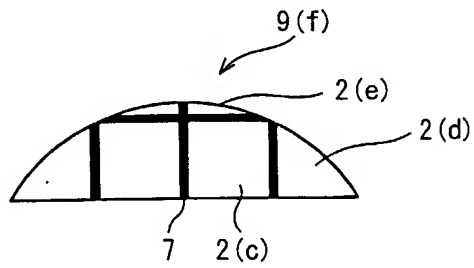


図13(a)

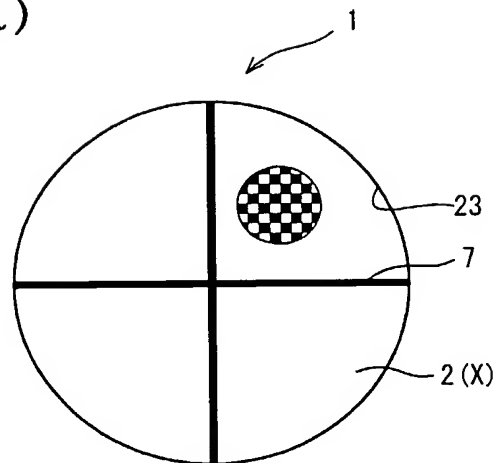


図13(b)

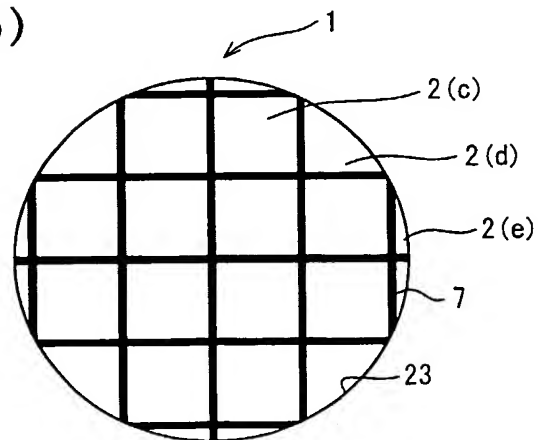
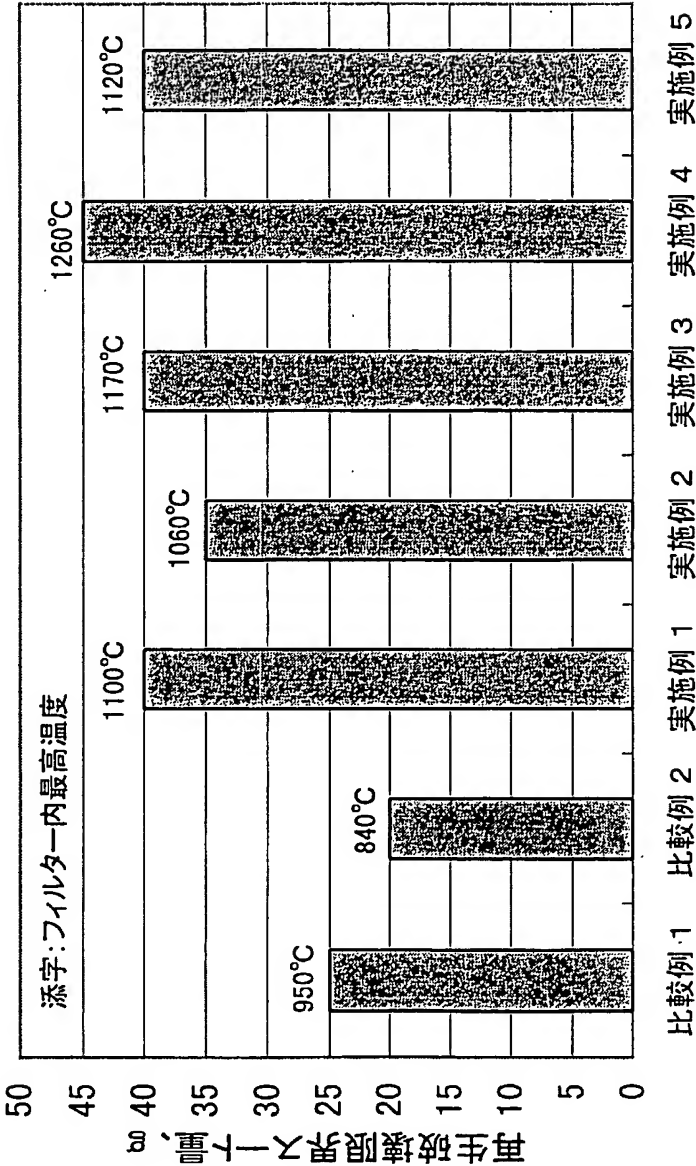


図14



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02107

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ F01N3/28, B01D53/92, B32B3/12//B01D39/20, B01D46/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ F01N3/28, B01D53/92, B32B3/12//B01D39/20, B01D46/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2002
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2002	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 9-220480 A (Nippon Steel Corp.), 26 August, 1997 (26.08.97), Claims; page 3, column 3, lines 13 to 20, 29 to 32; column 4, lines 16 to 18; example 1 (Family: none)	1
X	JP 2000-210517 A (NGK Insulators, Ltd.), 02 August, 2000 (02.08.00), Claims; page 3, column 3, lines 18 to 20, 35 to 37; page 4, column 5, lines 3 to 5 (Family: none)	1
X	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 159273/1987 (Laid-open No. 63715/1989) (Mitsubishi Motors Corp.), 24 April, 1989 (24.04.89), Claims; examples; Figs. 1 to 4 (Family: none)	1

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
10 June, 2002 (10.06.02)

Date of mailing of the international search report
25 June, 2002 (25.06.02)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02107

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 73813/1992 (Laid-open No. 47620/1994) (Ibiden Co., Ltd.), 28 June, 1994 (28.06.94), Claims; page 7, Par. No. [0014]; examples; Fig. 2 (Family: none)	1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02107

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:
(See extra sheet)

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.: 1

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02107

Continuation of Box No.II of continuation of first sheet(1)

The matter common to Claims 1 through 14 is that a compression elastic material is disposed between the outer peripheral surface of one or more honeycomb segments not forming the outermost peripheral surface of the honeycomb structure in which a plurality of honeycomb segments consisting of honeycomb structures having a number of axially extending communication holes separated by partition walls are integrated, and a honeycomb segment adjoining thereto.

However, the search result has proved that said technical feature is not novel as it is disclosed in the document JP 9-220480, A (Shin-Nihon Seitetsu K.K.), 26. August. 1997 (26. 08. 97), Claims, lines 13-20, 29-32, column 3, page 3, and lines 16-18, column 4, the same page, and Embodiment 1.

In addition, said document has proved that Claims 3, 9 have no novel technical feature in common with their dependent Claims.

As a result, said absorbent material is within the limits of prior art, so that in the sense of the second sentence of PCT Rule 13. 2, this common matter is not a special technical feature.

Therefore, there is no special technical feature common to all of Claims 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14.

Since there is no other common matter that is considered to be a special technical matter in the sense of the second sentence of PCT Rule 13. 2, a technical relationship in the sense of PCT Rule 13 cannot be found among those different inventions.

After all, it is clear that Claims 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14 do not satisfy the requirement of unity of invention.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ F01N 3/28, B01D53/92, B32B 3/12 // B01D39/20, B01D46/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ F01N 3/28, B01D53/92, B32B 3/12, B01D39/20, B01D46/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996

日本国公開実用新案公報 1971-2002

日本国登録実用新案公報 1994-2002

日本国実用新案登録公報 1996-2001

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 9-220480 A (新日本製鐵株式会社) 1997. 08. 26 特許請求の範囲、第3頁第3欄第13-20、29-32行、同頁第4欄第16-18行、実施例1 (ファミリーなし)	1
X	JP 2000-210517 A (日本碍子株式会社) 2000. 08. 02 特許請求の範囲、第3頁第3欄第18-20、35-37行、第4頁第5欄第3-5行 (ファミリーなし)	1

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

10.06.02

国際調査報告の発送日

25.06.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

中村 泰三



4Q

9040

電話番号 03-3581-1101 内線 3468

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	日本国実用新案登録出願 6 2 - 1 5 9 2 7 3 号(日本国実用新案登録出願公開 1 - 6 3 7 1 5 号)の願書に添付した明細書及び図面のマイクロフィルム (三菱自動車工業株式会社) 1989. 04. 24 実用新案登録請求の範囲、実施例、第1-4図 (ファミリーなし)	1
X	日本国実用新案登録出願 4 - 7 3 8 1 3 号(日本国実用新案登録出願公開 6 - 4 7 6 2 0 号)の願書に添付した明細書及び図面の内容を記録したCD-ROM (イビデン株式会社) 1994. 06. 28 実用新案登録請求の範囲、第7頁項目0014、実施例、第2図 (ファミリーなし)	1

第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところこの国際調査機関は認めた。

別紙参照

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

請求項1

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

別紙

請求項1乃至14に共通の事項は、隔壁により仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔を有するハニカム構造体からなる複数のハニカムセグメントが一体化されてなるハニカム構造体の最外周面を構成しない1又は2以上のハニカムセグメントの外周面とこれに隣接するハニカムセグメントとの間に圧縮弾性材料を配してなることである。

しかしながら、調査の結果、当該技術的特徴は、文献JP 9-220480, A (新日本製鐵株式会社), 26. 8月. 1997 (26. 08. 97)、特許請求の範囲、第3頁第3欄第13-20、29-32行、同頁第4欄第16-18行、実施例1、に開示されているから、新規でないことが明らかになった。

なお、当該文献により、請求項3、9についてもそれらの従属項との間に共通する新規な技術的特徴がないことが明らかとなった。

結果として、該吸着材は先行技術の域を出ないから、PCT規則13. 2の第2文の意味において、この共通の事項は、特別な技術的特徴ではない。

それゆえ、請求項1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14の全てに共通の特別な技術的特徴はない。

PCT規則13. 2の第2文の意味において特別な技術的事項と考えられる他の共通の事項は存在しないので、それらの相違する発明の間にPCT規則13の意味における技術的な関連を見出すことはできない。

結局、請求項1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14は、発明の単一性の要件を満たしていないことが明らかである。